

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

07.01.2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2004年 1月 9日

出願番号
Application Number: 特願2004-003873
[ST. 10/C]: [JP2004-003873]

出願人
Applicant(s): 松下電器産業株式会社

2005年 2月 17日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

八 月

洋
官
印

BEST AVAILABLE COPY

【書類名】 特許願
【整理番号】 2205050056
【提出日】 平成16年 1月 9日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 H01M 10/02
【発明者】
 【住所又は居所】 大阪府守口市松下町 1番 1号 松下電池工業株式会社内
 【氏名】 藤野 明子
【発明者】
 【住所又は居所】 大阪府守口市松下町 1番 1号 松下電池工業株式会社内
 【氏名】 林 徹也
【発明者】
 【住所又は居所】 大阪府守口市松下町 1番 1号 松下電池工業株式会社内
 【氏名】 大畠 積
【特許出願人】
 【識別番号】 000005821
 【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100097445
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 岩橋 文雄
【選任した代理人】
 【識別番号】 100103355
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 坂口 智康
【選任した代理人】
 【識別番号】 100109667
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 内藤 浩樹
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 011305
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9809938

【書類名】特許請求の範囲**【請求項 1】**

複合リチウム酸化物からなる正極と、リチウムを保持しうる材料からなる負極と、セパレータと、非水溶媒からなる電解液により構成されるリチウム二次電池において、前記正極または前記負極の少なくともいずれか一方は、無機酸化物フィラーおよび結着剤からなる多孔膜層が、電極合剤部および集電体部の双方に接着形成され、前記正極および前記負極が、前記セパレータを介して捲回構成されていることを特徴とする捲回型リチウムイオン二次電池。

【請求項 2】

複合リチウム酸化物からなる正極と、リチウムを保持しうる材料からなる負極と、セパレータと、非水溶媒からなる電解液により構成されるリチウム二次電池において、前記正極または前記負極の少なくともいずれか一方は、無機酸化物フィラーおよび結着剤からなる多孔膜層が、電極合剤部、集電体部、およびリード部表面接着形成され、前記正極および前記負極が、前記セパレータを介して捲回構成されていることを特徴とする捲回型リチウムイオン二次電池。

【請求項 3】

前記多孔膜層の結着剤の少なくとも1種は、ポリアクリロニトリル基を含むゴム性状高分子であることを特徴とする請求項1または2記載の捲回型リチウムイオン二次電池。

【書類名】明細書

【発明の名称】捲回型リチウムイオン二次電池

【技術分野】

【0001】

本発明は、耐短絡性、耐熱性に優れた捲回型リチウムイオン二次電池に関する。

【背景技術】

【0002】

リチウムイオン二次電池などの化学電池では、正極と負極との間に、それぞれの極板を電気的に絶縁し、さらに電解液を保持する役目をもつセパレータがある。リチウムイオン二次電池では、現在、主にポリエチレンからなる微多孔性薄膜シートが使われている。

【0003】

しかしながら、これら樹脂からなるシート状セパレータは、概して高温で収縮しやすく、よって内部短絡や釘のような鋭利な形状の突起物が電池を貫いた時、瞬時に発生する短絡反応熱により短絡部が拡大し、さらに多大な反応熱を発生させ、異常過熱を促進するという問題や、150℃以上の高温下に電池が置かれた場合、同様の理由で正負極が短絡し、急激な発熱をするといった問題を有している。また、この短絡は合剤塗布されていない集電体部と対極の合剤部の接触、特に正極集電体と負極合剤部との接触によって起こる短絡反応熱が非常に大きく、この接触によって電池の破裂、発火に至る可能性もあることが分かっている。

【0004】

従来の技術としては、製造工程で生じる内部短絡を防止するため、通常用いられているポリオレフィン系樹脂微多孔膜を用い、電極上に固体微粒子からなる多孔膜層を形成する技術（特許文献1参照）が提案されている。

【特許文献1】特開平7-220759号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら従来の技術は正極活物質塗布層上もしくは負極活物質塗布層上のみに形成するものなので、一番危険な短絡個所、つまり合剤が塗布されていない集電体と対極の合剤部との接触を回避できない。

【0006】

本発明は上記課題を解決するもので、耐熱性、耐短絡性に優れた多孔膜層を、従来のシート状セパレータと併用したリチウムイオン二次電池を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0007】

上記課題を解決するために本発明の請求項1に記載のリチウムイオン二次電池は、複合リチウム酸化物からなる正極と、リチウムを保持しうる材料からなる負極と、セパレータと、非水溶媒からなる電解液により構成されるリチウム二次電池において、前記正極または前記負極の少なくともいずれか一方は、無機酸化物フィラーおよび結着剤からなる多孔膜層が、電極合剤部および集電体部の双方に接着形成され、前記正極および前記負極が、前記セパレータを介して捲回構成されていることを特徴とするものである。

【0008】

この構成では、正負極の少なくともいずれか一方は、多孔膜層が、電極合剤部だけでなく、合剤が塗布されていない集電体部においても形成されているため、高温下に電池がさらされセパレータが熱収縮した場合や、内部短絡や釘のような鋭利な形状の突起物が電池内部に混入した場合等に、従来懸念されていたような集電体部と合剤部が短絡することによる熱暴走を回避できる。

【0009】

そして、本発明の請求項2に記載のリチウムイオン二次電池は、複合リチウム酸化物からなる正極と、リチウムを保持しうる材料からなる負極と、セパレータと、非水溶媒から

なる電解液により構成されるリチウム二次電池において、

前記正極または前記負極の少なくともいずれか一方は、無機酸化物フィラーおよび結着剤からなる多孔膜層が、電極合剤部、集電体部、およびリード部表面に接着形成され、前記正極および前記負極が、前記セパレータを介して捲回構成されていることを特徴とするものである。

【0010】

通常リード部は、集電体部に溶着されているため、集電体部よりさらに厚みが増し、上記異常事態における接触の可能性も高くなる。この構成では、多孔膜層がリード部にも形成されているため、従来懸念されていたリード部と合剤部の短絡をも避けることで、異常事態での熱暴走を回避できる。

【0011】

最後に、本発明の請求項3に記載のリチウムイオン二次電池は、請求項1または2記載の捲回型リチウムイオン二次電池において、前記多孔膜層の結着剤の少なくとも1種は、ポリアクリロニトリル基を含むゴム性状高分子であることを特徴とするものであり、この構成の電池においては、高温下において分解または溶融が抑制できるため、多孔膜の構造が維持できるだけでなく、結着力に優れているため、少量でより強い多孔膜層の形成が可能である。

【発明の効果】

【0012】

本発明によれば、耐短絡性、耐熱性に優れた多孔膜層を、従来のシート状セパレータと併用したリチウムイオン二次電池を提供することが可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0013】

本発明の好ましい態様を、図1および図2を用いて以下に説明する。

【0014】

まず本発明の骨子である多孔膜層4の形成箇所については、以下に詳述する正負極のいずれかに合剤部1および集電体部2に接着形成されていなければならない。まず、合剤部上のみに多孔膜層を形成した場合、内部短絡時に集電体部2と合剤部1との接触が起こり得る。この場合、多大な短絡反応熱を発生するため電池の熱暴走が起こり、極めて危険な状態になる。

【0015】

ここで、図1または図2において示すように点線の円で囲んだリード部3は、多孔膜層4で覆われていても、いなくても構わない。また片側面のみ多孔膜層4で覆われていても良い。覆われていないとリードの取り付けがしやすく、覆われていると、リード部3と合剤部1の短絡をも避けることができる。

【0016】

また、多孔膜層は正負極いづれかの電極上に形成されなければならない。まずセパレータ上に接着形成した場合、自身の耐熱性にかかわらず、内部短絡に伴う多大な発熱によって、シート状セパレータとともに多孔膜層も収縮するという欠点を有する。また単独に多孔膜層でシートを形成する場合、シート形状を保持する観点からその厚みを相当に大きくする必要がある上、多量の結着剤を必要とするため、特性および設計容量維持の観点から好ましくない。また結着剤のうち少なくとも1種は、結晶融点および分解開始温度が250℃未満でないことが好ましい。この理由は、内部短絡の代用評価である釘刺し試験において、試験条件によっては内部短絡時の発熱温度は局所的に数百℃を超えるため、結晶性であり結晶融点が低いものや、非結晶性であっても分解開始温度が低いものは、樹脂の軟化や焼失による多孔膜層の変形に伴って、釘が正負極を貫き異常過熱を引き起こすからである。以上の不具合を回避するため、多孔膜層の少なくとも1種は、非結晶性で耐熱性が高くゴム弾性を有する、ポリアクリロニトリル基を含むゴム性状高分子であることが好ましい。このような材料を結着剤として含む多孔膜層を備えたリチウムイオン電池は、結晶性を有し膜質が硬い多孔膜層を備えた電池と異なり、正負極にセパレータを介し捲回構成

する場合、多孔膜がひび割れなどにより損失しないため、歩留を高く維持しつつ生産できるという利点を有する。

【0017】

さらに多孔膜層にフィラーとして用いられるのは、無機酸化物でなければならない。各種樹脂微粒子もフィラーとしては一般的であるが、前述のように耐熱性が必要である上に、リチウムイオン電池の使用範囲内で電気化学的に安定である必要があり、これら要件を満たしつつ塗料化に適する材料としては無機酸化物が最も好ましい。またこの無機酸化物は電気化学的安定性の観点からアルミナであり、その多孔膜層に占める含有率が50重量%以上99重量%以下であることがより好ましい。50重量%を下回る結着剤過多な場合、アルミナ間の隙間で構成される細孔構造の制御が困難になり、99重量%を上回る結着剤過少な場合、多孔膜層の密着性が低下するため脱落による機能の損失が引き起こされるからである。この無機酸化物は複数種を混合あるいは多層化して用いても良い。特にメディアン径の異なる同一種の無機酸化物を混合して用いることは、より緻密な多孔膜層を得るために好ましい態様の1つである。

【0018】

この多孔膜層の厚みは特に限定されないものの、前述した多孔膜層の効用を發揮しつつ設計容量を維持する観点から、組み合わせるセパレータ厚との総和が現セパレータ仕様(15~30μm)と同程度、すなわち0.5~20μmであることがより好ましい。

【0019】

正極については、活物質としてコバルト酸リチウムおよびその変性体(アルミニウムやマグネシウムを共晶させたものなど)・ニッケル酸リチウムおよびその変性体(一部ニッケルをコバルト置換させたものなど)・マンガン酸リチウムおよびその変性体などの複合酸化物を挙げることができる。結着剤としてはポリテトラフルオロエチレン(PTFE)・変性アクリロニトリルゴム粒子バインダー(日本ゼオン(株)製BM-500Bなど)を増粘効果のあるカルボキシメチルセルロース(CMC)・ポリエチレンオキシド(PEO)・可溶性変性アクリロニトリルゴム(日本ゼオン(株)製BM-720Hなど)と組み合わせても良く、また単一で結着性・増粘性の双方を有するポリフッ化ビニリデン(PVDF)およびその変性体を単独または組み合わせて用いても良い。導電剤としてはアセチレンブラック・ケッテンブラック・各種グラファイトを単独あるいは組み合わせて用いて良い。

【0020】

負極については、活物質として各種天然黒鉛および人造黒鉛・シリサイドなどのシリコン系複合材料・および各種合金組成材料を用いることができる。結着剤としてはPVDFおよびその変性体をはじめ各種バインダーを用いることができるが、前述のようにリチウムイオン受入れ性向上の観点から、SBRおよびその変性体をCMCをはじめとするセルロース系樹脂と併用・少量添加するのがより好ましいといえる。

【0021】

電解液については、塩としてLiPF₆およびLiBF₄などの各種リチウム化合物を用いることができる。また溶媒としてエチレンカーボネート(EC)、ジメチルカーボネート(DMC)、ジエチルカーボネート(DEC)、メチルエチルカーボネート(MEC)を単独および組み合わせて用いることができる。また正負極上に良好な皮膜を形成させたり、過充電時の安定性を保証するために、ビニレンカーボネート(VC)やシクロヘキシルベンゼン(CHB)およびその変性体を用いることも可能である。

【0022】

セパレータについては、リチウムイオン電池の使用範囲に耐えうる組成であれば特に限定されないが、ポリエチレン・ポリプロピレンなどのオレフィン系樹脂の微多孔フィルムを、単一あるいは複合して用いるのが一般的であり、また態様として好ましい。このセパレータの厚みは特に限定されないものの、前述した多孔膜層の効用を發揮しつつ設計容量を維持する観点から、組み合わせる多孔膜厚との総和が現セパレータ仕様(15~30μm)と同程度、すなわち10~25μmであることがより好ましい。

【実施例】

【0023】

コバルト酸リチウム3kgを、呉羽化学（株）製PVDF#1320（固形分12重量%のN-メチルピロリドン（NMP）溶液）1kg、アセチレンブラック90gおよび適量のNMPとともに双腕式練合機にて攪拌し、正極ペーストを作製した。このペーストを15μm厚のアルミニウム箔集電体に間欠塗布乾燥し、総厚が160μmとなるように圧延した後、円筒型18650に挿入可能な幅にスリットし、正極フープを得た。

【0024】

一方、人造黒鉛3kgを、日本ゼオン（株）製スチレン-ブタジエン共重合体ゴム粒子接着剤BM-400B（固形分40重量%）75g、CMC30gおよび適量の水とともに双腕式練合機にて攪拌し、負極ペーストを作製した。このペーストを10μm厚の銅箔集電体に間欠塗布乾燥し、総厚が180μmとなるように圧延した後、円筒型18650に挿入可能な幅にスリットし、負極フープを得た。

【0025】

これらの正負極を、20μm厚のポリエチレン微多孔フィルムをセパレータとして捲回構成し、所定の長さで切断して電槽缶内に挿入し、EC・DMC・MEC混合溶媒にLiPF6を1MとVCを3重量%溶解させた電解液を、5.5g添加して封口し、円筒型18650リチウムイオン二次電池を作製した。これを比較例1とする。

【0026】

一方、メディアン径0.3μmのアルミナ970gを、日本ゼオン（株）製ポリアクリロニトリル変性ゴム接着剤BM-720H（固形分8重量%）375gおよび適量のNMPとともに双腕式練合機にて攪拌し、多孔膜ペーストを作製した。このペーストをポリエチレン微多孔フィルム上に片側5μmずつ塗布乾燥し、あとは比較例1と同様に電池を作製した。これを比較例2とする。

【0027】

また比較例1の負極フープを用い、上記多孔膜ペーストを負極合剤上のみに片側5μmずつ間欠塗布乾燥し、あとは比較例1と同様に作製した電池を比較例3とする。

【0028】

また比較例1の正極フープを用い、上記多孔膜ペーストを正極合剤上および正極合剤が塗布されていない集電体部に片側5μmずつ塗布乾燥し、あとは比較例1と同様に作製した電池を実施例1とする。

【0029】

これに対し、比較例1の負極フープを用い、上記多孔膜ペーストを負極合剤上および負極合剤が塗布されていない集電体部に片側5μmずつ塗布乾燥し、あとは比較例1と同様に作製した電池を実施例2とする。

【0030】

さらに、比較例1の負極フープにリードを溶着後、上記多孔膜ペーストを負極合剤上、集電体部、およびリード上に片側5μmずつ塗布乾燥し、あとは比較例1と同様に作製した電池を実施例3とする。

【0031】

さらに、実施例2（フィラーが0.3μm径アルミナ）に対し、同一径のポリエチレンビーズおよびチタニアを用い、あとは実施例2と同様に作製した電池を比較例4および実施例4とする。

【0032】

さらに、実施例2（接着剤がBM-720H）に対し、CMCおよびPVDFを用い、あとは実施例2と同様に作製した電池を実施例5とする。

【0033】

これらの構成条件をまとめたものを表（1）に示す。

【0034】

【表1】

電池No	多孔膜層		フィラー 種類	接着剤		
	接着箇所			種類	結晶融点	分解温度
					(°C)	(°C)
実施例 1	正極合剤+集電部					
実施例 2	負極合剤+集電部		アルミナ	BM-720H	なし	320
実施例 3	負極合剤+集電+リード部					
実施例 4	負極合剤+集電部		チタニア			
実施例 5			アルミナ	PVdF	174	360
比較例 1	なし		—	—	—	—
比較例 2	セパレータ		アルミナ			
比較例 3	負極合剤部			BM-720H	なし	320
比較例 4	負極合剤+集電部		PEビーズ			

【0035】

これらの電池を、以下に示す方法にて評価した。その結果を（表2）に記す。

【0036】

（釘刺し安全性）

電池充放電特性評価後の電池について、20℃環境において、以下の充電を行った。

【0037】

定電流充電：1400mA（終止電圧4.25V）

定電圧充電：4.25V（終止電流100mA）

充電後の電池について、2.7mm径の鉄製丸釘を、20℃環境下で5および180mm/秒の速度で貫通させたときの発熱状態を観測した。この電池の貫通箇所における1秒後および90秒後の到達温度を（表2）中に示した。

【0038】

（高温安全性）

電池充放電特性評価後の電池について、20℃環境において、以下の充電を行った。

【0039】

定電流充電：1400mA（終止電圧4.25V）

定電圧充電：4.25V（終止電流100mA）

充電後の電池について、5℃/分で150℃まで昇温し、150℃で3時間放置した。

【0040】

このときの電池電圧と電池温度を（表2）中に示した。

【0041】

【表2】

電池No	電池安全性評価					
	釘刺し安全性		高温安全性			
	釘速度5mm/秒	釘速度180mm/秒	最高温度			
	到達温度 1秒後 (°C)	到達温度 90秒後 (°C)	到達温度 1秒後 (°C)	到達温度 90秒後 (°C)	到達温度 1秒後 (°C)	到達温度 90秒後 (°C)
実施例 1	72	91	70	88	70	88
実施例 2	76	89	69	93	69	93
実施例 3	71	86	70	88	70	88
実施例 4	74	94	72	89	72	89
実施例 5	78	115	73	94	73	94
比較例 1	139	—	135	—	135	—
比較例 2	81	151	69	93	69	93
比較例 3	76	131	74	98	74	98
比較例 4	146	—	142	—	142	—

【0042】

以下、順を追って評価結果を記す。

【0043】

まず多孔膜層の有無についてであるが、多孔膜層が存在しない比較例1が釘刺し速度の如何に関わらず1秒後に過熱が顕著であるのに対し、多孔膜層をセパレータ上に接着形成させた比較例2は、釘刺し後の過熱速度は遅くなつており、最終的に熱暴走の抑止には至らなかつた。それに対し多孔膜層を負極合剤部上および合剤が塗布されていない集電体部上に接着形成させた実施例1、2は大幅に過熱速度が抑制されていることが分かつた。これら試験後の電池を分解し調べたところ、全ての電池においてセパレータが広範囲に及んで溶融しているが、実施例1、2については、多孔膜層がその原形を留めていることがわかつた。このことから、多孔膜層の耐熱性が十分な場合、釘刺し後に起る短絡による発熱においても膜構造は破壊されず、集電体部と合剤部との短絡を抑制でき、反応熱が抑えられたため、短絡箇所の拡大を抑止でき、大幅な過熱を防げたものと考えられる。

【0044】

一方、多孔膜層がセパレータ上に接着形成された比較例2は、釘刺し速度が遅い場合に過熱が促進されていることがわかる。電池を分解して調べたところ、前述したセパレータの溶融に伴い、多孔膜層も変形していることが確認できた。また、高温耐熱試験においても、短絡による過剰な発熱が確認できた。この理由として、本発明の多孔膜層は、水平方向の構造は接着形成される基板（正負極およびセパレータ）によって保持されるため、如何に多孔膜層自身に耐熱性があつても、収縮や溶融といった基板（セパレータ）の形状変化にやむなく追従せざるを得ないことが反映された結果といえる。

【0045】

ここで、内部短絡の代用評価である釘刺し試験の特徴とデータの解釈について詳述する。まず釘刺しによる過熱については、過去の実験結果から、以下のように説明できる。すなわち、まず正負極が接触（短絡）することによりジュール熱が発生し、この熱によって耐熱性の低い材料（セパレータ）が溶融し、強固な短絡部を形成する。これによってジュール熱の発生が継続され、正極の熱的不安定領域（165℃以上）に至つて過熱暴走するというものである。

【0046】

種々の先例において、過熱暴走が確認されなかつた仕様においても、本実施例においては一部過熱の促進が観察できた。具体的には釘刺し速度を減じた場合であるが、このメカニズムについては以下のように考えられている。すなわち、釘刺し速度を減じて単位時間当たりの短絡面積を限定した場合、相当の熱量が限定箇所に集中することになり、正極の熱的不安定領域に達するのが早まる。一方、釘刺し速度を増して単位時間当たりの短絡面積を拡大した場合、熱が大面積中に分散されることになり、正極の熱的不安定領域に達しにくくなるというものである。

【0047】

現在、各種用途においてリチウムイオン二次電池の安全規格がより厳しくなる中で、多孔膜層の耐熱性を利用することで、釘刺し速度（短絡状態）の如何に関わらず過熱暴走が抑止できる本発明は、より実用性の高い技術であるといえる。

【0048】

さらに多孔膜層中の接着剤についてであるが、PVDF（実施例5）を用いた場合、釘刺し速度を減じたときに過熱暴走は抑制できるものの、ポリアクリルニトリル基を持つゴム状高分子に比べると、より急激な温度上昇が見られた。したがつて、非結晶性で耐熱性が高い（320℃）、ポリアクリロニトリル基を含むゴム性状高分子であることが好ましい。この接着剤はゴム弾性を有するが、この性質が本実施例のような捲回構成による電池にとって非常に好ましい効果を發揮する。

【0049】

さらにフィラーの種類についてであるが、アルミナに換えてチタニアを用いた場合（実施例4）、ほぼアルミナと同様の諸機能を果たすことが確認できた。ところがポリエチレンビーズ（PEビーズ）を用いた場合、釘刺し安全性については多孔膜層がないに等しい結果であった。基本的にセパレータである微多孔性フィルムと同レベルの耐熱性しか有さ

ないフィラーを用いた場合、本発明の機能は果たせないことがわかる。よってフィラーには無機酸化物を選択することが必須であると考える。

【産業上の利用可能性】

【0050】

本発明のリチウムイオン二次電池は、安全性の優れたポータブル用電源等として有用である。

【図面の簡単な説明】

【0051】

【図1】本発明の一実施の形態の極板構成を模式的に示した断面図

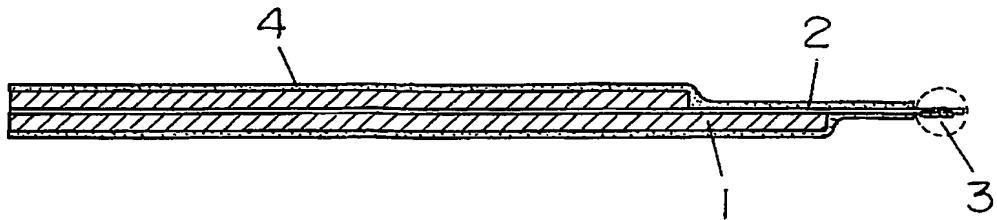
【図2】本発明の別の実施の形態の極板構成を模式的に示した断面図

【符号の説明】

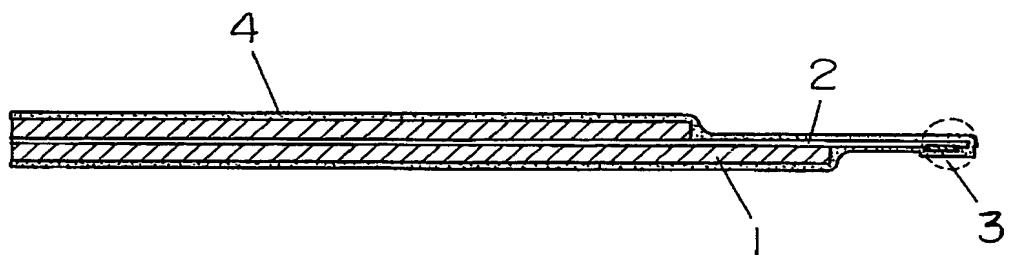
【0052】

- 1 合剤部
- 2 集電体部
- 3 リード部
- 4 多孔膜層

【書類名】図面
【図1】



【図2】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】リチウムイオン二次電池において、従来の微多孔膜フィルムセパレータは高温で収縮しやすく、内部短絡により発生する短絡反応熱が異常過熱を促進するという課題を有していた。

【解決手段】正負極の少なくともいずれか一方に無機酸化物フィラーおよび結着剤からなる多孔膜層を接着形成することによってセパレータの熱収縮の影響を排除し、また多孔膜層が電極合剤部および集電体部に接着形成されることで、集電部と対極合剤部との短絡による異常過熱を抑止することを特徴とするリチウムイオン二次電池。

【選択図】図1

特願 2004-003873

出願人履歴情報

識別番号 [000005821]

1. 変更年月日 1990年 8月28日

[変更理由] 新規登録

住所 大阪府門真市大字門真1006番地
氏名 松下電器産業株式会社

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/019629

International filing date: 28 December 2004 (28.12.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-003873
Filing date: 09 January 2004 (09.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 03 March 2005 (03.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.